



Received 03 APR 2005

(19) 世界知的所有權機關
國際事務局

(43) 國際公開日
2004年4月15日(15.04.2004)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2004/030837 A1

(51) 國際特許分類⁷: B08B 3/10, A61H 33/00, A23N 12/02

(71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 独立行政法人産業技術総合研究所(NATIONAL INSTITUTE OF ADVANCED INDUSTRIAL SCIENCE AND TECHNOLOGY) [JP/JP]; 〒100-8921 東京都千代田区霞が関1丁目3番1号 Tokyo (JP).

(21) 國際出願番号: PCT/JP2003/012523

発明者: および

発明者/出願人(米国についてのみ): 矢部 彰
(YABE,Akira) [JP/JP]; 〒305-8564 茨城県つくば市並木1-2-1 独立行政法人産業技術総合研究所内 Ibaraki (JP), 後藤 瑞希 (GOTOU,Mizuki) [JP/JP]; 〒305-8564

(22) 國際出願日: 2003年9月30日 (30.09.2003)

日本語

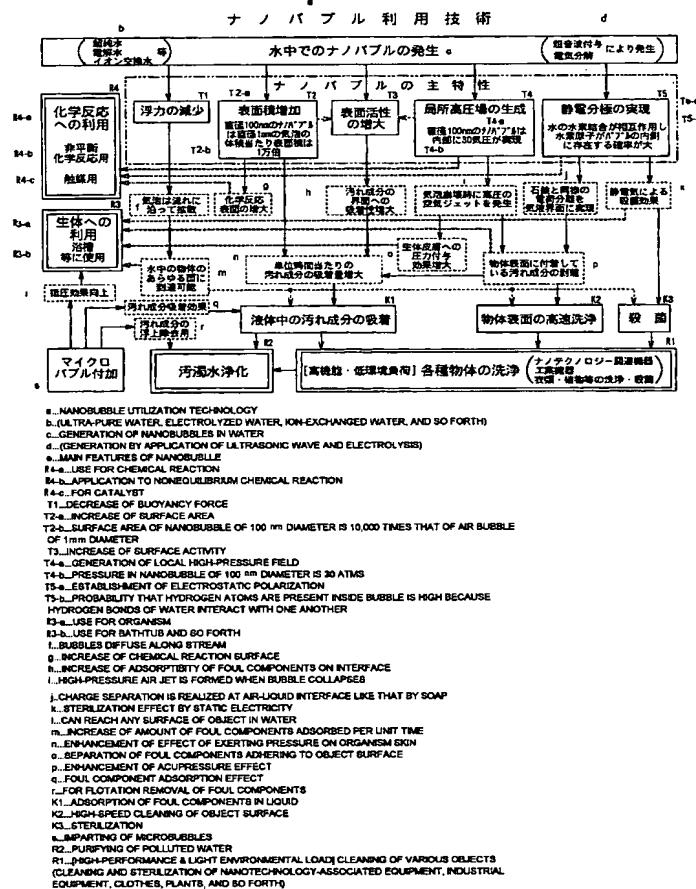
(36) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願2002-288963 2002年10月1日 (01.10.2002) JP

[統葉有]

(54) Title: NANOBUBBLE UTILIZATION METHOD AND DEVICE

(54) 発明の名称: ナノバブルの利用方法及び装置



(57) Abstract: The present inventors have found the presence of a nanobubble that has not been confirmed conventionally, and established a method for producing nanobubbles. The inventors have determined the theoretically expected characteristics of the produced nanobubbles, found new characteristics by analyzing data experimentally collected, and elucidated the relationship among the characteristics. Specifically, the inventors have found that a nanobubble has features such as decrease of the buoyant force, increase of the surface area, increase of the surface activity, generation of a local high-pressure field, interface activating action, and sterilizing action thanks to electrostatic polarization. By the association among the features, any of wide variety of objects can be cleaned with high performance and with light environmental load thanks to the function of adsorbing foul components, the function of cleaning the surface of an object quickly, and the sterilizing function, and polluted water can be purified. Nanobubbles can be applied to an organism to recover from fatigue and effectively used for chemical reactions.

(57) 要約: 本発明者等によって、従来その存在すら確認できなかったナノバブルの実存を解明し、かつそのナノバブルの製法を先に確立している。そこで更に、発生しているナノバブルの特性について理論的に予想される特性を確定し、また実験により得られたデータを解析して新たな特性を発見し、それらの特性の相互関係を解明した。その結果、ナノバブルには浮力の減少、表面積の増加、表面活性の増大、局所高圧場の生成、静電分極の実現による界面活性作用と殺菌作用等の特性が存在することが明らかになり、それらが相互に関連することによつ

て、汚れ成分の吸着機能、物体表面の高速洗浄機能、殺菌機能によって各種物

{繞葉有}



茨城県つくば市並木1-2-1 独立行政法人産業技術
総合研究所内 Ibaraki (JP).

(81) 指定国(国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM,

AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 國際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明細書

ナノバブルの利用方法及び装置

5 技術分野

本発明は、直徑がナノオーダの気泡における表面積の増加、高圧の発生、静電分極の実現、表面活性の増大、浮力の減少等の特性を利用して、ナノバブルを種々の分野に有效地に利用するためのナノバブルの利用方法及びその利用装置に関する。

10

背景技術

従来より、直徑がマイクロメートルオーダーであるマイクロ気泡（バブル）に関しては広く研究がなされており、キャビテーションによって直徑が10ミクロン程度の気泡を発生させ、このマイクロバブルの気液溶解及び浮上分離等の機能性を利用して、また油の汚濁水の浄化機能等を利用して環境保全のために用い、或いは養殖等での成長促進効果等を利用して水系動植物の成長促進のために用いることが考えられ、一部利用されるようになっている。

このようなマイクロバブルの機能をより高めるために、この気泡をより小さなものとすることが当然考えられ、小径のバブルとして直徑がナノメータのオーダのナノバブルの利用が考えられている。

しかしながら、従来の技術ではこのようなナノオーダの気泡、即ちナノバ

ブルの存在を確かめる手法が存在せず、水中に溶解した窒素や酸素などが分子状態で存在するか、ナノメートルの気泡の状態で存在するかについてすら確認されていない状況である。ましてやナノバブルの発生装置は存在せず、従来のキャビテーションによる気泡発生手段によって生成することができるの

5 か否かも確かめることができなかった。

ナノバブルが存在すると仮定した場合には、例えばその水中に存在する蒸気の気泡のような单一成分系のナノバブルと、その水に溶けている空気としての窒素や酸素の気体からなる多成分系のナノバブルが存在することが考えられる。单一成分系のナノバブルとしてはその気泡の存在する径の圧力以上

10 の内部圧力を持つ微小気泡は存在できないので、100気圧程度の圧力が実現できる環境が必要となる。このようなナノバブルは、カーボンナノチューブの中に閉じこめられた水に気液界面が存在しているという観察によってその存在が推測されているが、これはあくまでも推測に過ぎない。また、キャビテーションやサブクール（過冷却）沸騰時に気泡の消滅が生じることが知

15 られており、この消滅プロセスの途中でナノレベルの気泡が過渡的に存在することが、発光等により予測されている。また、多成分系のナノバブルは、上記のように、水に空気、窒素や酸素、炭酸ガスが溶解すると共に気泡として存在する場合であり、直径1ミクロン程度のマイクロバブルまでは観察されているが、それ以下のナノレベルの直径の気泡に関しては未だ確認されて

20 いなかった。

そのため、水中にナノバブルが存在することが確認されていない以上、上記のような推測の域を出ず、また仮にナノバブルが存在するものと仮定して

も、その特性は前記のようなマイクロバブルの延長線上の特性を備えているのか、更には他の特性を備えているのかも解明せず、ましてやこれを発生させる方法を考えることは単に発生方法の想像の域を出ず、更にこのナノバブルを有効に利用することは従来のマイクロバブルの特性の延長線としての推

5 測による机上の議論にすぎなかった。

このような現状を解決するため、本発明者等は鋭意研究を重ねた結果、ナノバブルが存在することを確認すると共に、ナノバブルを発生する装置を開発し、「ナノ気泡の発生装置」として特許出願している（特願2002-145325号）。この技術は同特許出願の明細書中に詳述しているのでその

10 詳細な説明は省略するが、第5図に模式図として示すような装置を用いることにより実現できた。

第5図において、試験室1は水の電気分解を行うとともに、下部の超音波発生装置2の作用によりナノバブルを発生する室であり、中の様子を観察できるようにガラス窓を側面2面に備えたステンレス製の矩形管からなる。その縦は40mm、横は40mmであり、高さは定在波が生じるように後述するように発生する波の半波長（27mm）の整数倍（10倍）の270mmとしている。その矩形管上端には気泡を含む液体の放出口を有するステンレス製の天板を配置し、その矩形管の下端には、振動板を有する超音波発生装置2を裏面に取り付けたステンレス製の底板を配置している。

20 超音波発生装置（STM社製、SC-100-28を使用）は、周波数28kHzのフェライト振動子を備え、その出力は前記振動板に伝達され、試験室内に超音波を発生する。試験室1の底板には電気分解用陽極を取り付け

、陰極は矩形管内に連絡する水素排出用の配管内に取り付けている。電気分解用電源装置 (YOKOGAWA-HEWLETT PACKARD社製の 4329A HIGH RESISTANCE METERを使用) としては、抵抗の大きいものでも予め設定した一定電圧を印可して微量な電流を流す
5 ことが可能な装置を用いている。

蒸留水供給管 6 からの蒸留水は超純水製造装置 5 (Millipore社製、Milli-Q Synthesisを使用) によって超純水とし、試験室 1 の下部には超純水配管 7 を介して超純水を供給可能としている。試験室 1 内においては、この超純水が電気分解によって底板表面の陽極で酸素が
10 発生し、この酸素は超音波の作用により気泡となって水中から放出される。この時ナノバブルが一部発生する。また、電気分解を働かせることなく超音波付与のみでも、圧力変動により目視できないキャビテーションが発生し、ナノバブルが発生する。

また、試験室 1 の上部には気泡配管 8 を介して粒子カウンター 4 に流出で
15 きるようにし、前記のようにして発生した気泡をカウントする。粒子カウンター 4 は直徑 100 nm 以下の粒子をカウントする第 1 粒子カウンター (リオン社製、KS16を使用) と、直徑 100 nm 以上の粒子をカウントする
… 第 2 粒子カウンター (リオン社製、KS17を使用) とを備えており、各粒子カウンターは各々、光源として波長 830 nm 程度のレーザーを出力する
20 半導体レーザーを用い、フォトダイオードで受光している。粒子カウンター 4 を通って超純水製造装置 5 に戻り、この管路を循環することができるよう
にしている。

なお、前記粒子カウンターは、計測器内のテストセル中に半導体レーザーによって光を当て、その光線の中を通過する気泡若しくは微粒子から出る散乱光強度の変化を読みとて気泡または粒子の直径を計測するものである。この範囲で気泡（若しくは粒子）は球形とみなせ、気泡（もしくは粒子）径 5 は波長と同程度なので、このときの散乱光強度 I_θ と気泡直径 d との関係は Mie 散乱の理論から式を連立させて解くことができる。

上記のような装置の作動に際して、従来の蒸留+イオン交換水は 500 nm 以上 の微粒子（あるいは微少気泡）の数が 10 万個 / m³ 程度存在し、このままでは微少気泡が微粒子であるかの区別が付かないので、マイクロ気泡 10 の気液界面の流動特性の実験装置を改良し、超純水製造装置を連続運転させ、上記微粒子の個数を数個 / m³ 程度まで減少させた状態でナノバブル発生させた。それにより、後述するような実験によって、水中にナノバブルが発生し、定常的に存在することが確認可能となった。

まず超純水製造装置と試験部との間で上記のように水を循環させ、粒子カウンターの数値が安定するまで試験部内の水を精製する。粒子カウンターの値がほぼ一定になった後、超音波発信器で超音波を付与し、粒子カウンターによって発生した気泡の測定を行った。この気泡の測定に際しては、水温、供給水及び試験部通過後の全有機炭素量 (TOC) 、超微粒子数及び気泡数、超音波発信器の出力電流をモニターしながら行っている。このときの水中 20 酸素濃度（水中酸素の 1 気圧の飽和濃度に対する比） $\gamma = 2.0$ とし、超音波は周波数 28 kHz、強さ 100 W である。

その結果第 6 図に示すようなグラフが得られた。同図は気泡の直径群毎の

濃度（個／m¹）のグラフであり、各々の直径群について超音波振動を印可する前（a）、超音波振動の印加中（b）、超音波振動を印可した後（c）を示すと共に、超音波振動の印加による気泡の濃度変化を示すための、超音波振動印加前と印加後の値の差（b-a）のグラフを示している。

5 この実験により、水中に少なくとも直径n m単位の気泡、即ちナノバブルが存在することが確認され、直径が50 nm程度のナノバブルも高濃度で存在することも確認されるとともに、特に超音波振動を印可すると確実にナノバブルが発生し、超音波印加により定常に存在することがわかった。

また第6図のグラフから、超音波振動を印可すると全ての大きさについて10 ナノバブルが発生し、気泡の直径が小さいものほどその濃度（個／m¹）が大きいことがわかる。更に、同図における差（b-a）の部分のみを取り出して示したグラフである第7図から明らかなように、超音波振動によって発生するナノバブルはその直径が小さいほど濃度（個／m¹）が高いこともわかる。但し、このように気泡径が小さいものほど気泡数は多くなるが、体積15 は気泡径の3乗に比例するため、各直径階層毎に体積平均したものに乗じて求めると、気泡径が大きいものの方が体積割合は高い。

なお、気泡の利用技術については下記のような文献が存在する。

〔特許文献1〕

特開2002-119号

20 〔特許文献2〕

実開平4-21381号公報

〔特許文献3〕

実開昭55-180425号公報

発明の開示

上記のように、本発明者等は先にナノバブルが存在することを明らかにし

5 特許出願しており、そこに開示しているように、また前記に要約して記載しているように、電気分解、超音波振動の付与によってナノバブルを確実に発生させることができることがわかったものであるが、それによって上記のようなナノバブルを有効に利用することを考えることは現実の課題となつた。そのため、本発明者等はこのようなナノバブルの特性を解明するとともに、

10 その特性を利用した有効な用途を検討し、実験を重ねたものである。

したがつて本発明は、本発明者等によって存在が明らかになり、その発生装置も確立したナノバブルを有効に利用するナノバブルの利用法及びその利用装置を提供することを目的とする。

本発明者等は上記のようなナノバブルの特性を解明した結果、50 nm～
15 100 nm程度のナノバブルは水中で表面張力により数十気圧程度になっており、この気泡が崩壊するときには数十気圧程度の空気をジェットとして生じることができ、それにより物体表面の洗浄効果が期待できること、また、気泡の表面は活性が高く、汚れ成分を界面に吸着させることができるので水の汚れ成分の除去に有効であり、特に100 nm程度の気泡は通常観察される数mm程度の気泡に比べて同じ体積に対して表面積が数万倍大きく、洗浄速度の大きいことが期待されること、更に、ナノメーターオーダーの水中の空気泡に対する分子動力学の計算結果は、水の水素結合が相互作用をし、水

素原子が気泡の内側に存在する確率の大きいことが予測され、このような分子の相互作用が発揮できれば、ナノメーターオーダーの気泡により、石鹼と同様な電荷分離を気液界面に実現することができ、それによる洗浄促進効果、静電気的な殺菌効果なども期待できることがわかった。

5 上記のようなナノバブルの特性を利用し、本発明によるナノバブルの利用方法及び利用装置の一つの態様としてナノバブル利用洗浄方法、及びナノバブル利用洗浄装置に適用したものであり、ナノバブルを含む水により、物体の洗浄を行うものである。この点については、従来比較的微細な空気の泡を利用して洗浄を行うことは考えられていたものの、ナノバブルを含む水により各種物体を洗浄することは、ナノバブルの存在自体確認することができなかつた以上、従来のナノバブルで実際に各種物体を洗浄する事の検討は机上の空論に過ぎないものであったが、本発明者等によりナノバブルの存在を実証し、その発生方法及び装置を確立した結果、現実にこのナノバブルを洗浄方法及び洗浄装置に利用可能となったものであり、更に実際ナノバブルを発生させることによりその特性が確認されるとともに、特にナノバブル表面の電解分離現象等の新たな特性を見出すことによって本発明に至ったものである。

本発明によるナノバブル利用洗浄方法及びナノバブル利用洗浄装置をより具体化した態様として、前記ナノバブルを含む水により物体の洗浄を行うに際し、超純水によりナノテクノロジー関連機器を洗浄するようにしたものであり、また、前記ナノバブルを含む水により工業機器を洗浄するものであり、更に、前記ナノバブルを含む水により生体を洗浄するようにしたものであ

り、また、使用する水は、電解水、またはアルカリイオン水もしくは酸性水としたものであって、また、前記ナノバブルを含む水には、マイクロバブルも加えるとより機能を向上させることができる。

また、ナノバブルは前記のように、気泡の表面は活性が高く、汚れ成分を5 界面に吸着させることができるので水の汚れ成分の除去に有効であり、更に体積あたりの表面積が極めて大きい特性等を利用することにより、本発明によるナノバブルの利用方法及び利用装置の他の態様は、ナノバブルによって汚濁物を吸着するために利用する。更にこのようにして汚濁物を吸着したナノバブルが水中を上昇できるように、マイクロバブルを混入したものである10 。

更に、ナノバブルはそれが崩壊すると前記のように数十気圧程度の空気のジェットを生じるので、本発明によるナノバブルの利用方法及び利用装置の他の態様として、ナノバブルを含む水を生体表面に接触させることにより、生体の疲労回復を行うために利用するものである。また、その際にマイクロ15 バブルも含むようにし、また、マイクロバブルを浴槽で生体に接触させるようにしたものである。

更に、ナノバブルは体積あたりの気泡の表面積が極めて大きいので、本発明によるナノバブルの利用方法及び利用装置の他の一つとして、これらの化学反応に変化を与えることができる特性を利用し、種々の化学反応に有効に20 利用することができるものである。その際、この化学反応は特に非平衡化学反応のために利用し、更に、触媒として作用させるようにしたものである。

また、上記のようなナノバブルにより植物、特に野菜、果物、農作物、食

物當に接觸させてそれらの洗浄・殺菌に利用し、プールや貯水槽の水の淨化・殺菌に利用するものである。また、上記のようなナノバブルは、少なくとも超音波付与、または電氣分解によって安定的に発生させる。なお、その際、超音波付与と電氣分解を組み合わせても良いことは当然である。

5

図面の簡単な説明

第1図は、本願発明によるナノバブル利用技術の、機能、作用効果、及び利用分野の相互関係を示す利用分野体系説明図である。

第2図は、ナノバブルの表面で生じる静電分極の状態を示す図である。

10 第3図は、ナノバブルの表面で生じる微粒子吸着による個体状微粒子化の状態を示す説明図である。

第4図は、固体状微粒子と流動表面球体の、レイノルズ数と抵抗係数の関係を調べた実験データである。

15 第5図は、本発明者等が純水中でナノバブルを発生し、これを観察した実験装置の模式図である。

第6図は、同実験装置により得られた、超音波振動子の作動前と作動中のマイクロバブルの濃度を示すグラフである。

第7図は、同グラフにおいてその濃度差部分のみを取り出し、ナノバブルの発生状態を示すグラフである。トランジスタの概観説明図である。

20

発明を実施するための最良の形態

本発明については、本発明者等によって先に特許出願を行っているように

、ナノバブルが存在することを明らかにするとともに、電気分解、超音波振動の付与によってナノバブルを確実に発生させる技術を確立したことにより、このナノバブルを有効に利用することを考え、ナノバブルの特性の解明を行ったものであるが、その結果を第1図に示している。

5 同図から明らかなように、通常の水中を含め、超純粋、電解水、イオン交換水によるアルカリ水或いは酸性水中で、前記のように超音波の付与により、また電気分解によってナノバブルを発生させることができ、そのナノバブルは図中T1～T5として示しているような主な特性を有している。

第1図に示すようにナノバブルの特性として表面積の増加（T2）については特に顕著なものがあり、これは従来のマイクロバブルの研究においてナノバブルが存在する場合には理論的にその表面積が増大し、マイクロバブルの特性をより向上させることができるであろう事や予測されていた。しかしながら実際にはナノバブルが存在するか否かも不明であったところであり、本発明者等によってナノバブルの存在が解明され、発生手段が確立したことにより、従来の仮定の議論から実際にナノバブルが存在するものとして、予測されていた理論通り、直径100nmのナノバブルは直径1mmの気泡と比較し、体積あたりの表面積（比表面積）は1万倍となる特性を備えた気泡の存在が確定されたものである。

この特性により泡の表面に物質が吸着する能力は飛躍的に増大し、単位時間当たりの汚れ成分の吸着量の増大が計られ、高速で液体中の汚れ成分の吸着を行うことができ（K1）、各種物体の清浄に利用することができ（R1）、また、汚濁水の浄化にも有効に利用することができる（R2）。更に、

このように表面積が飛躍的に増大するので、この表面を反応面とする化学反応については、化学反応表面を増大することが可能となり、化学反応分野に有効に利用可能となる（R 4）。

また、ナノバブルは局所高圧状の生成特性（T 4）が顕著である。このこととも従来のマイクロバブルの研究において、ナノバブルが存在すると仮定した場合にはその特性が予測されていたところではあるが、前記のようにナノバブルの存在が確認され、その発生手段が確立した結果、水中の気泡内圧力 Δp 、気泡の表面張力 σ 、気泡の直径の関係式 [$\Delta p = 2\sigma/d$] より、水中の100 nmのナノバブルは、 $\Delta p = 30 \text{ atm}$ となり、内部に30気圧という局所的な高圧を実現可能となる特性を備えた気泡の存在が確定されたものである。

この特性により、ナノバブルが物体に衝突して気泡の崩壊が生じるとき、内部の高圧空気が噴出し、空気ジェットを発生するため、その物体表面に付着している汚れ成分を確実に剥離することができるようになり、物体表面の高速洗浄が可能となるため（K 2）、各種物体の洗浄に好適である（R 1）。また、この局所高圧状態を利用し、化学反応に対しての有効利用が考えられる（R 4）。更に、その空気ジェットを浴槽等に用いることにより生体に適用すると、人体等の生体の皮膚への圧力を付与する効果が増大して、整体の指圧効果による疲労回復効果が向上するほか、前記のように気泡は皮膚の表面に付着している汚れ成分を剥離する効果を生じるので、その点でも生体への利用は有効である（R 3）。

また、ナノバブルの表面は体積あたりの表面積の増加（T 2）、及び局所

高圧場の生成（T 4）とも関連し、その表面の活性が増大し（T 3）、それにより汚れ成分の界面への吸着性が増大する。その結果、前記のように体積あたりの表面積の増大による単位時間当たりの汚れ成分の吸着量の増大効果と相まって、その効果を更に高めることができ、液体中の汚れ成分の吸着機能を高め（K 1）、各種機器の洗浄性を向上することができる（R 1）。また、汚濁水浄化にも効果的である（R 2）。

更に、ナノバブルは静電分極の実現（T 5）が可能となるという特有の特性を備えている。即ち第2図に示すように、水素結合がお互いに相互作用することにより時間平均として静電分極する効果が生じ、水素原子がバブルの内側に存在する確率が高くなる。これは分子動力学の計算によりその特性を理論的に知ることが可能である。

この特性により、従来の石鹼と同様の電荷分離を気液界面に実現することができ、物体表面に付着している汚れ成分の剥離作用を生じ、前記空気ジェットによる物理的な剥離効果とともに、物体の剥離効果を相乗的に高めて物体の表面の高速洗浄が可能となり（K 2）、各種物体の洗浄・殺菌に有效地に利用できる（R 1）。また、この物体表面に付着している汚れ成分の剥離効果を生体に対しても適用し（R 3）、各種病気のために石鹼を使用することができない病人皮膚を洗浄することができ、界面活性剤を使用できる場合でも直ちに全てを洗い流す必用のある人に対しても有效地に利用できる。更に、この静電分極を利用し、化学反応への利用が考えられる（R 4）。

前記のようなナノバブルに汚れ成分が吸着する状態についてみると、例えば第3図に示すように、比抵抗 $10 M\Omega \cdot cm$ 、粒径 $0.5 \mu m$ 以上の微粒

子数が 1 0 0 0 0 個／m l、T O C (全有機炭素量) が 1 p p m 程度存在する蒸留＋イオン交換水中で、前記のように超音波振動等によりナノバブルを発生すると、最初その表面が流動性境界面を備えていて流動表面球体となっており抵抗係数 C D が小さいのに対して、そのナノバブルには直ちにその気 5 液界面に不純物が付着して、抵抗係数 C D の大きな個体状微粒子と同様になる。

これは例えば第 4 図の実験結果に示すように、マイクロメーターオーダーの直径を持つマイクロバブルが発生したばかりの状態における流動表面球体の各レイノルズ数に対する抵抗係数は、同図 (b) の下側のグラフの状態に 10 なるのに対して、前記のように固体状微粒子となったマイクロバブルは、蒸留およびイオン交換した水の場合のグラフで明らかのように、同図の上側のグラフに示されているようにその抵抗係数が増大することがわかる。このような抵抗係数の増大によって、微粒子化したナノバブルは元々の浮力の減少特性があるのに加えてほとんど液体中を流動できなくなり、液体中に漂うだけとなる。 15

前記のように水中で発生したナノバブルには直ちに周囲の不純物が付着することが明らかであり、特に各種物体の洗浄に際して、また微粒子や有機物質を含む汚濁水の浄化に際して有効である。

このような石鹼同様の電荷分離を気液界面に実現し、物体表面に付着している汚れ成分を剥離する機能、剥離した後の不純物を吸着する機能の存在により、従来の広範の分野で利用されている洗剤に代えてこの技術を適用することが可能となる。それにより、例えば日本の洗剤使用の 10% をこの技術

に置き換えると、別途の計算によると石油換算で 100 万バレルにものぼり、日本のエネルギー使用量の 1 日分に相当するものとなり、我が国にとつて、またいずれの国にとってもこの技術は極めて重要な技術ということができる。

5 また、洗濯機を使用する際の電力消費と、今後更に研究開発を行うことによって実現が確実視される洗浄効果を奏するための超音波振動子の駆動エネルギーによる電力消費とを比較すると、同一の洗浄効果について後者の方が格段に消費エネルギーが少なくなることが予想されている。このように、洗剤を使用しないこと、及び駆動エネルギーが少ないとによる石油消費減少
10 による炭酸ガス削減効果の点で、この発明は低環境負荷の洗浄技術ということができる。

更に、この静電分極の実現 (T 5) により、発生した静電気によって殺菌効果を生じるので、これを特に各種機器の洗浄 (R 1) に際して、洗浄する物体の表面の殺菌を行う必用がある際にはこれを有効に利用することができる (K 3)。また、ナノバブルにより植物、特に野菜、果物、農作物、食物
15 当に接触させてそれらの洗浄・殺菌に利用することもできる。また、これを生体に利用 (R 3) して、通常の人の他、特に皮膚の殺菌を必用とする病人に対して有効に適用することも可能である。なお、この静電分極の特性は、必用に応じて化学反応に有効に利用することも考えられる。また図面が錯綜
20 するので記載を省略しているが、汚濁水の浄化にもその殺菌作用は当然効果的であり、プールや貯水槽の水の浄化・殺菌にも有効に利用することができる。

また、ナノバブルは浮力が極めて減少し（T 1）、ほとんどゼロの状態となる。そのため、気泡は流れに沿って拡散し、水中の物体のあらゆる面に到達可能となる。それにより、前記のような単位時間当たりの汚れ成分の吸着量増大による液体中の汚れ成分の吸着作用の向上機能（K 1）、物体表面の
5 高速洗浄機能（K 2）、殺菌機能（K 3）を、その物体の内部の微細な空間まで入り込んでそれらの機能を発揮させ、各種機器の清浄効果を高めることができる（R 1）。このように、各種物体の洗浄を高機能で行うことができる。

更に、生体に対してナノバブルを利用するに際して、前記のような空気ジェットによる指圧効果、空気ジェットによる高圧による剥離作用、静電分極による石鹼と同様の効果、殺菌効果等についても、人体細部に行き渡らせることができる。なお、生体への利用に際して、その生体が魚等の動物である場合には、従来のマイクロバブルの養殖、鮮魚保持への適用と同様に適用することが考えられ、その際はナノバブルの浮力の減少特性（T 1）により、
15 水中に供給したナノバブルを水上に逃がすことなく有効に魚等に与えることが可能となる。

上記の点を要約すると、超純水や電解水、イオン交換水等の水中で、超音波付与や電気分解により発生するナノバブルは、浮力の減少（T 1）、表面積増加（T 2）、表面活性の増大（T 3）、局所高圧場の生成（T 4）、静電分極の実現（T 5）のナノバブルの主特性によって、ナノテクノロジー関連機器、工業製品、衣服等の各種の物体の洗浄を、液体中の汚れ成分の吸着機能（K 1）、物体表面の高速洗浄機能（K 2）、殺菌機能（K 3）等によ

り高機能で、且つ石鹼等を使用しない低環境負荷によって行うことができるようになる（R 1）。また、このようにして水中に分離した汚れ成分を含んだ汚濁水を初め、広範の分野で発生している汚濁水を特に液体中の汚れ成分の吸着機能（K 1）によって効果的に浄化することができる（R 2）。更に

5 、生体に対して殺菌、空気ジェットや石鹼効果による物体表面に付着している汚れ除去、空気ジェットによる指圧の各種効果を得ることができる（R 3）。また、局所高圧場の生成により、また静電分極の実現により、更に化学反応表面の増大により化学反応に対しても有効に利用することができるようになる（R 4）。

10 なお、上記のようなナノバブルが存在する水の中に、従来より使用されているマイクロバブルを付加すると、前記のようにマイクロバブルに汚れ成分が吸着すると固体状粒子化し、抵抗係数も増加するとともに元々浮力が少ないので、ナノバブルは液体表面方向に浮上することはほとんどなくなり、液体中を漂うだけとなっているが、付加されたマイクロバブルはこれらのナノバブルの微粒子をその表面に吸着し、液体中をその浮力で上昇し、液面中に集めることができ、それにより汚濁水の浄化をより効果的に行うことができる（R 2）。このようにして集められた汚れ成分を吸着し微粒子化したナノバブルは、液面をすくい取ることにより容易に取り去ることができる。なお、このようなマイクロバブルを付加しない場合には、或いは前記のように付
15 与した場合でも、上記第5図に示す実験装置における純水製造部分のフィルタのような分離手段にこの液体を通すことにより、外部に除去することができる。

20

また、マイクロバブル付加は汚れ成分の吸着に際して、マイクロバブルでは除去しにくい比較的大きな不純物が存在するとき、これを従来のマイクロバブルを用いた汚濁水の除去と同様に、このマイクロバブルによって有効に吸着し除去することができ、液体中の汚れ成分の吸着機能（K1）をより高めることができる。更に、このマイクロバブルを前記のようにナノバブルを供給している浴槽等に混入することにより、その比較的大きな泡が崩壊する従来の指圧効果を付加することができ、生体への利用がより効果的となる。

本発明によるナノバブルを利用した、特に各種物体の洗浄、汚濁水の浄化技術は、今後は産業上の広範な分野で大きなインパクトを与えることが予想されており、洗浄技術については特に半導体機器の洗浄のようなナノテクノロジーの技術分野において期待されるところが大きく、このようなナノテクノロジーの分野においては純水中にナノバブルを発生させたものを使用することが好ましい。

また、一般家庭を含めた洗濯の分野において、従来の洗剤に代わりうる技術であり、この技術が広範に利用されるようになると、洗剤そのもの、及び洗剤を製造するエネルギーの多くの部分が削減可能となり、また超音波振動子のエネルギー効率の点から、洗濯機の動力の多くの部分が削減可能となるので、これらの点から環境負荷を小さなものにすることができます。

また、現在より効果的な技術の開発が望まれている汚濁水の清浄分野において、ナノバブルを有効に発生する超音波振動子を用いることにより、また従来のマイクロバブル発生装置も共用することにより、有機物を含む微粒子を確実に除去することができ、また、微粒子等を吸着することにより固体微

粒子化したナノバブルをマイクロバブルで吸着し、その浮力により液体表面に浮上させることも可能となる。

本発明は上記のように、従来その存在は予想されてはいたものの、存在が確認されていなかったナノバブルが実際に存在することを明らかにし、かつ

5 そのナノバブルの製法も確立した本発明者等が、得られたナノバブルの特性について、理論的に予想される特性を確定し、また実験により得られたデータを解析して新たな特性を発見し、それらの特性の相互関係を解明することにより、このナノバブルを有効に利用することができる分野を特定したものであり、その一つの利用形態が物体の洗浄に利用することである。

10 この物体の洗浄については、ナノバブルがもつ浮力の減少、表面積増加、表面活性の増大、局所高圧場の生成、静電分極の実現による石鹼と同様の界面活性効果、静電気による殺菌効果を全て有効に利用し、それらの相互作用、及び相乗効果によって極めて効果的に物体の洗浄を行うことができるようになつたものである。また、汚濁水の清浄に際しても同様に有効に利用する

15 ことができる。

同様に、生体疲労回復に使用すると、前記各機能や作用によって効果的な生体疲労回復を行うことができる。また、前記各種の機能、作用によって化学反応にも有効に利用することができる。

20 産業上の利用可能性

本発明によるナノバブル利用技術は、第1図に示もしているように、ナノテクノロジー関連機器、工業機器、衣類、食物等の洗浄や殺菌に使用でき、ま

た、汚濁水浄化、浴槽等の生体への利用、更には各種化学反応へ利用することができる。

請 求 の 範 囲

1. ナノバブルを含む水により、物体の洗浄を行うことを特徴とするナノバブル利用洗浄方法。
- 5 2. 前記水は超純水であり、前記物体はナノテクノロジー関連機器である請求の範囲第1項記載のナノバブル利用洗浄方法。
3. 前記物体は、工業機器である請求の範囲第1項記載のナノバブル利用洗浄方法。
4. 前記物体は、生体である請求の範囲第1項記載のナノバブル利用洗
- 10 浄方法。
5. 前記ナノバブルを含む水は、電解水、またはアルカリイオン水もしくは酸性水である請求の範囲第3項または請求の範囲第4項記載のナノバブル利用洗浄方法。
6. 前記ナノバブルを含む水には、マイクロバブルも含むものである請求の範囲第1項乃至請求の範囲第5項のいずれか一つに記載のナノバブル利用洗浄方法。
- 15 7. 水中にナノバブルを発生する装置と、
被洗浄物体に前記ナノバブルを含む水を供給する水供給装置とを備えたこ
とを特徴とするナノバブル利用洗浄装置。
- 20 8. 前記水は超純水であり、前記物体はナノテクノロジー関連機器である請求の範囲第7項記載のナノバブル利用洗浄装置。
9. 前記物体は、工業機器である請求の範囲第7項記載のナノバブル利

用洗浄装置。

10. 前記物体は、生体である請求の範囲第7項記載のナノバブル利用洗浄装置。

11. 前記ナノバブルを含む水は、ナノバブルと電解水、またはアルカリイオン水、または酸性水である請求の範囲第9項または請求の範囲第10項記載のナノバブル利用洗浄装置。

12. 前記ナノバブルを含む水には、マイクロバブルも含むものである請求の範囲第7項乃至請求の範囲第11項のいずれか一つに記載のナノバブル利用洗浄装置。

10 13. ナノバブル及びマイクロバブルにより汚濁水を浄化することを特徴とするナノバブル利用汚濁水浄化方法。

14. 汚濁水中にナノバブル及びマイクロバブルを混入する装置を備えたことを特徴とするナノバブル利用汚濁水浄化装置。

15. ナノバブルを含む水を生体表面に接触させることにより、生体の疲労回復を行うことを特徴とするナノバブル利用生体疲労回復方法。

16. 前記ナノバブルを含む水にはマイクロバブルも含むものである請求の範囲第15項記載のナノバブル利用生体疲労回復方法。

17. 前記生体表面に接触させる手段は浴槽である請求の範囲第15項または請求の範囲第1項に記載のナノバブル利用生体疲労回復方法。

20 18. 水中にナノバブルを発生する装置と、
ナノバブルを含む水を生体表面に接触させる手段を備えたことを特徴とするナノバブル利用生体疲労回復装置。

19. 前記ナノバブルを含む水にはマイクロバブルも含むものである請求の範囲第18項記載のナノバブル利用生体疲労回復装置。

20. 前記生体表面に接触させる手段は浴槽である請求の範囲第18項または請求の範囲第19項に記載のナノバブル利用生体疲労回復装置。

5 21. ナノバブルを含む液体を化学反応に利用することを特徴とするナノバブル利用化学反応方法。

22. 前記化学反応は非平衡化学反応である請求の範囲第21項記載のナノバブル利用化学反応方法。

10 23. 前記ナノバブルは前記化学反応の触媒として作用するものである請求の範囲第21項記載のナノバブル利用化学反応方法。

24. ナノバブルを含む液体を化学反応に利用することを特徴とするナノバブル利用化学反応装置。

25. 前記化学反応は非平衡化学反応である請求の範囲第24項記載のナノバブル利用化学反応装置。

15 26. 前記ナノバブルは前記化学反応の触媒として作用するものである請求の範囲第24項記載のナノバブル利用化学反応装置。

27. ナノバブルを含む水を植物の洗浄殺菌に利用することを特徴とするナノバブル利用洗浄殺菌方法。

28. 前記植物は、少なくとも野菜、果物、農作物、食物の何れか一つであることを特徴とする請求の範囲第27項記載のナノバブル利用洗浄殺菌方法。

29. ナノバブルを含む水を植物に接触させて洗浄殺菌する手段を備え

たことを特徴とするナノバブル利用洗浄殺菌装置。

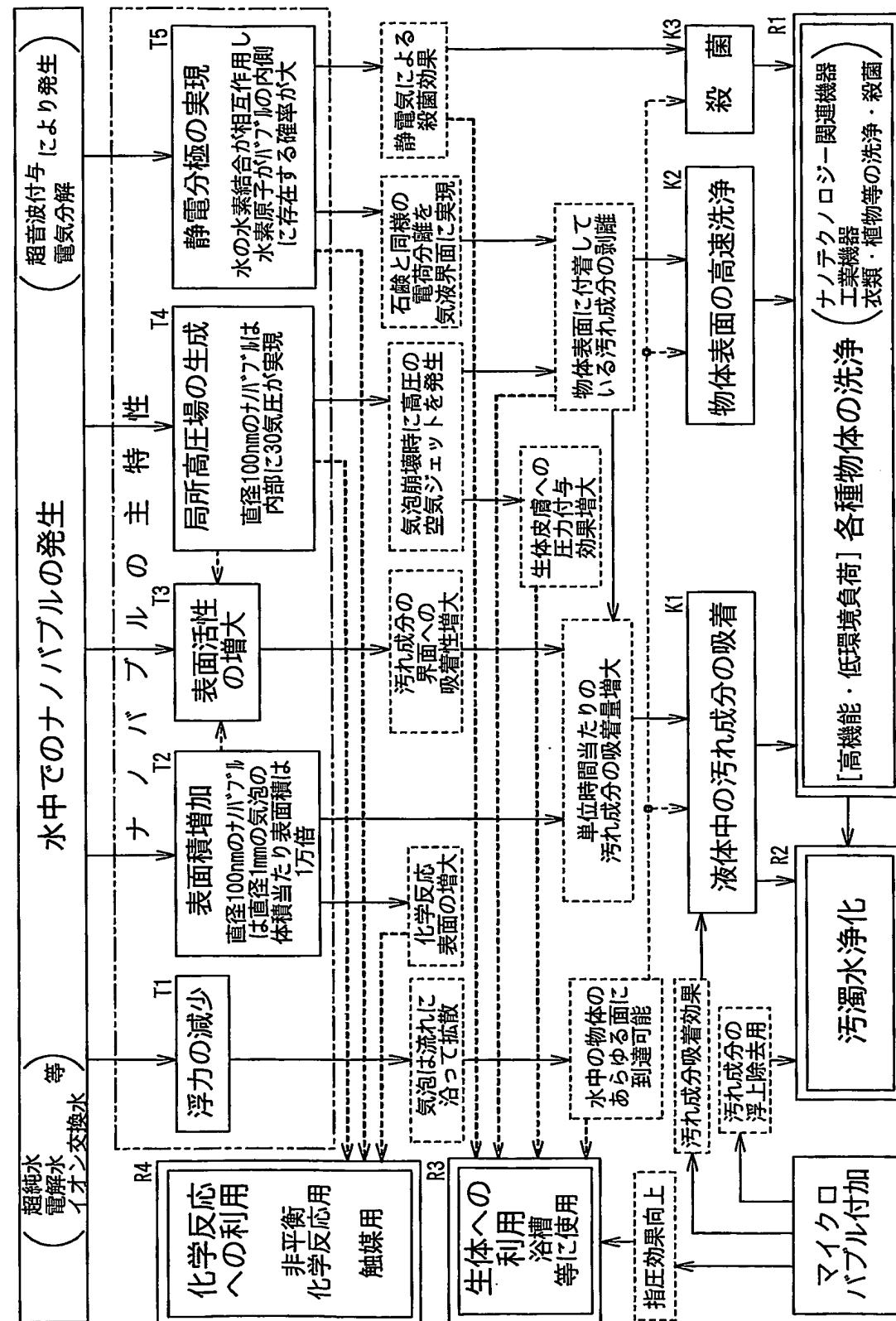
30. 前記植物は、少なくとも野菜、果物、農作物、食物の何れか一つであることを特徴とする請求の範囲第29項記載のナノバブル利用洗浄殺菌装置。

5 31. ナノバブルによりプールまたは貯水槽の水を浄化殺菌することを特徴とするナノバブル利用浄化殺菌方法。

32. プールまたは貯水槽にナノバブルを混入する装置を備えたことを特徴とするナノバブル利用洗浄殺菌装置。

33. 前記ナノバブルは少なくとも超音波付与、または電気分解により10発生させたものである請求の範囲第1項乃至請求の範囲第6項、請求の範囲第13項、請求の範囲第15項乃至請求の範囲第17項、請求の範囲第21項乃至請求の範囲第23項、請求の範囲第27項、請求の範囲第28項、請求の範囲第31項のいずれか一つに記載のナノバブル利用方法。

図一



第2図

ナノバブルの表面における
石鹼類似の電解分離現象

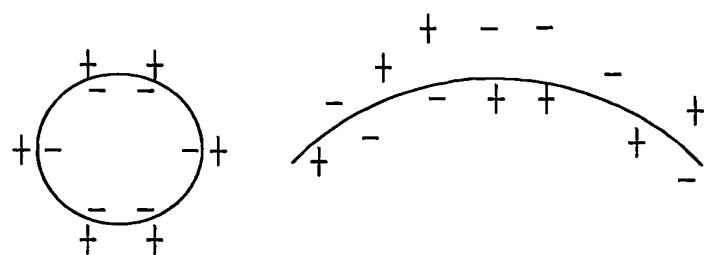
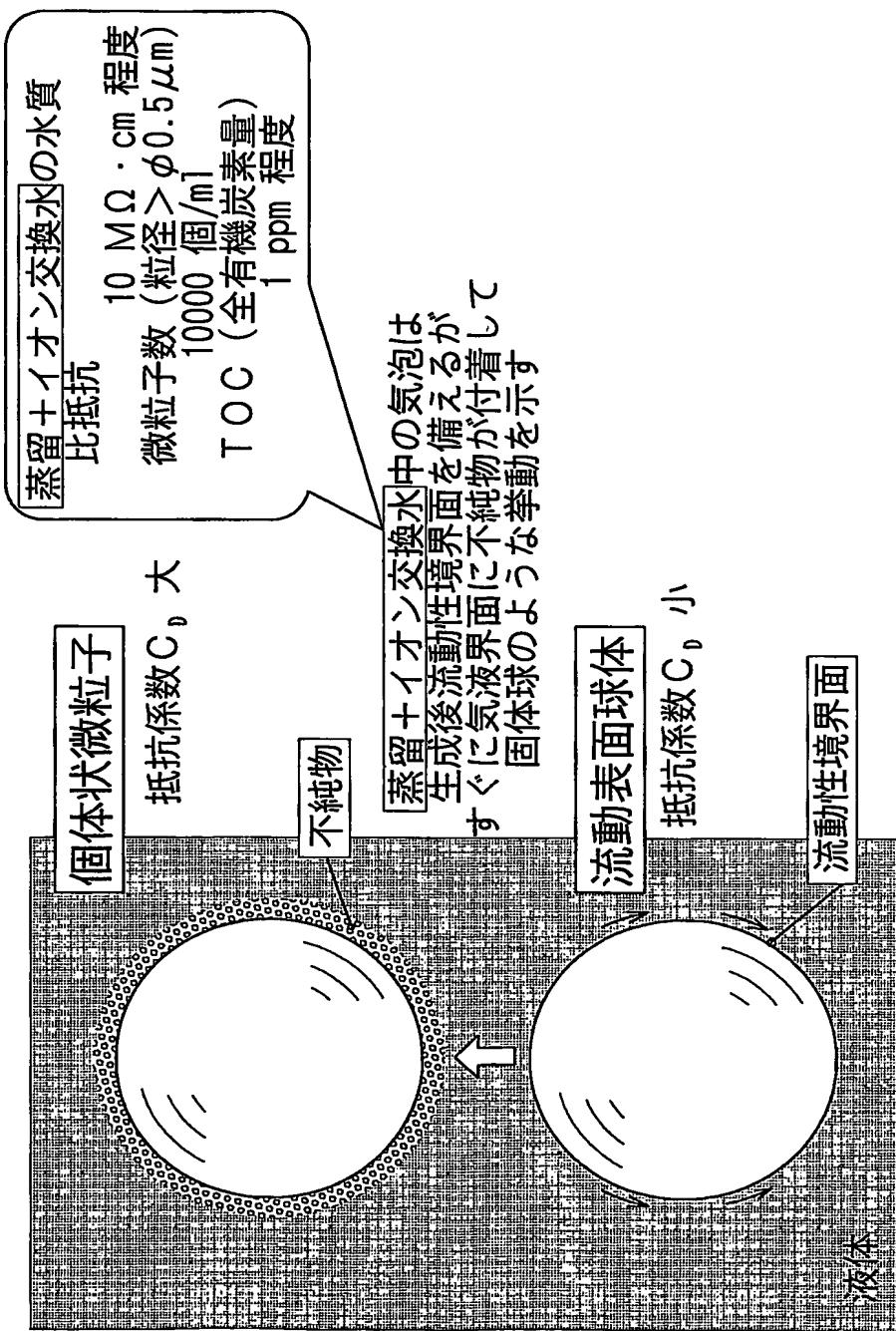
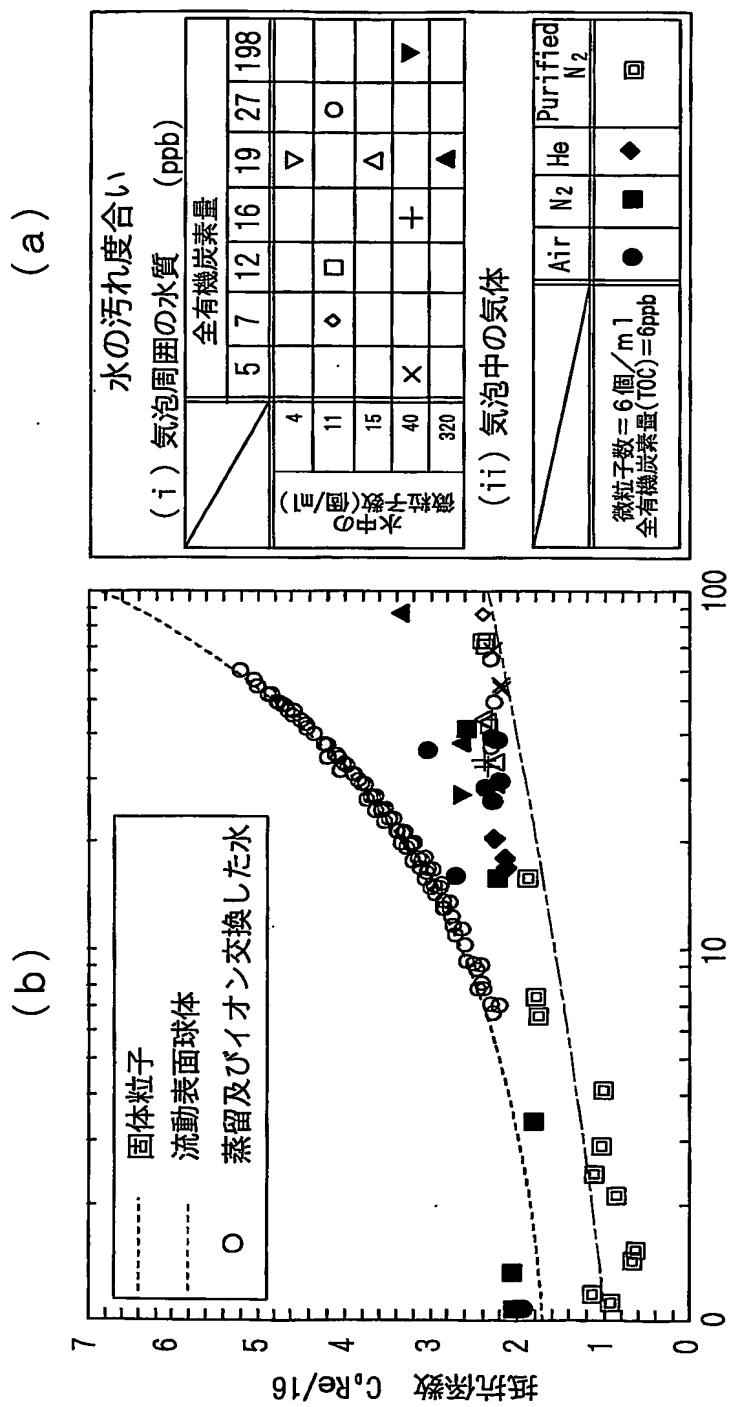


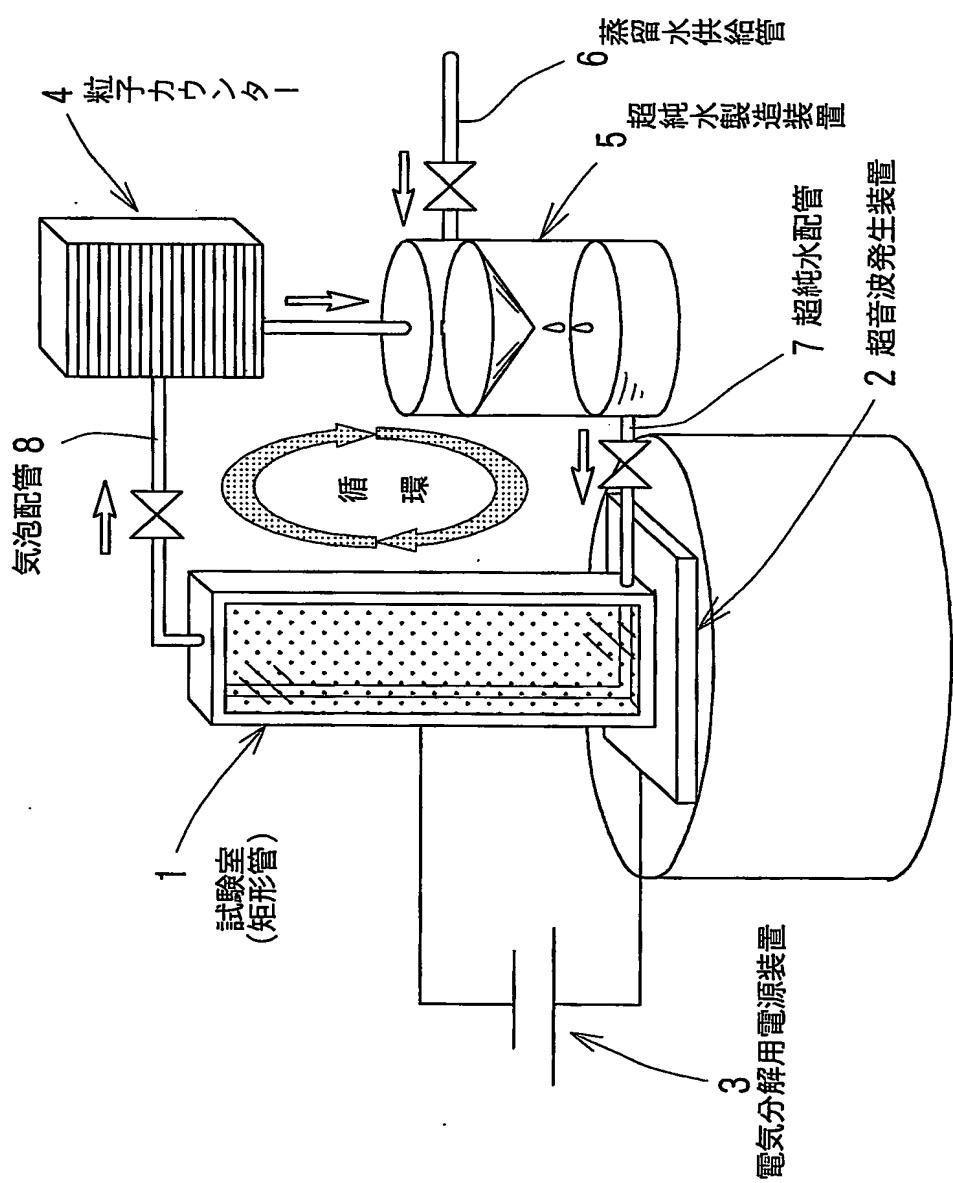
図3



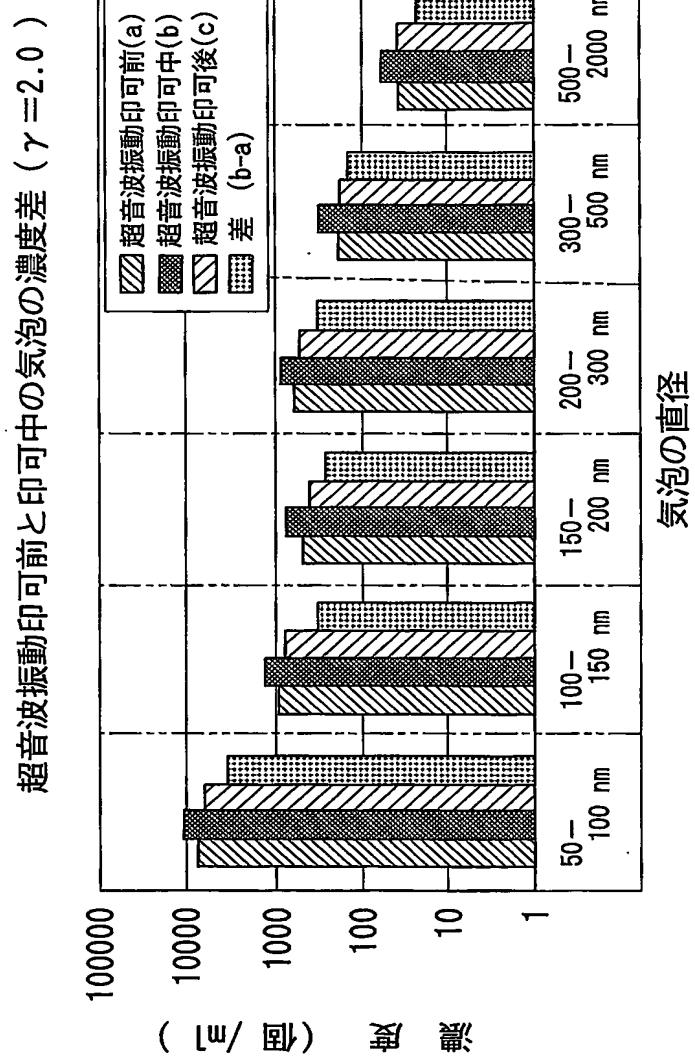
第4図



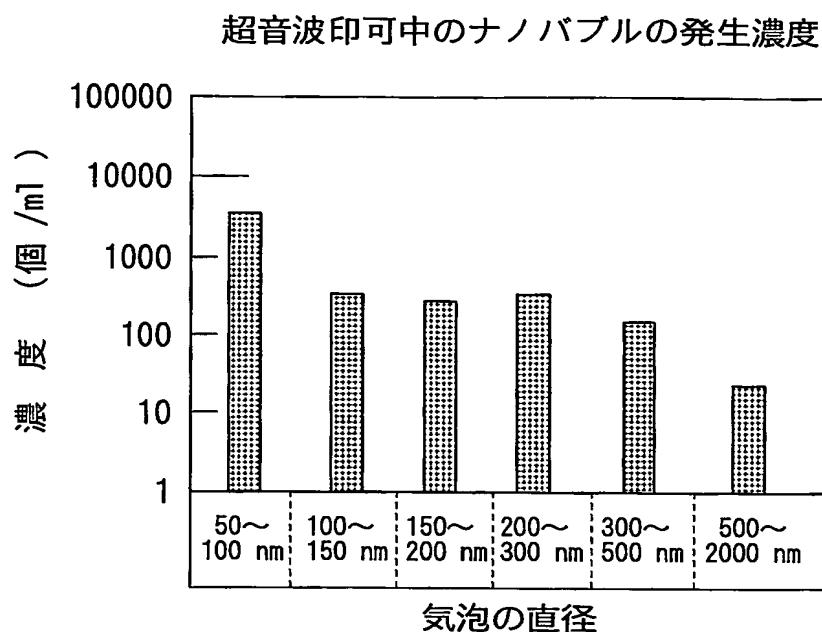
第5図



第6図



第7図



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP03/12523A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl' B08B3/10, A61H33/00, A23N12/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl' B08B3/10, A61H33/00, A23N12/02Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1940-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2003
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	US 6209855 B1 (Canzone Ltd., Tortola), 03 March, 2001 (03.03.01), Column 7, lines 16 to 35; column 8, line 51 to column 9, line 5 & JP 14-543960 A Page 2, lines 2 to 15; page 18, lines 1 to 13 & WO 00/67886 A & AU 4388700 A & EP 1173271 A	21-26, 33 1-20, 27-32
Y	Microfilm of the specification and drawings annexed to the request of Japanese Utility Model Application No. 63062/1990 (Laid-open No. 21381/1992) (Akira KOBAYASHI), 24 February, 1992 (24.02.92), Page 3, lines 11 to 12; page 4, line 16 to page 5, line 1 (Family: none)	1-12

 Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	"&" document member of the same patent family
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search 26 December, 2003 (26.12.03)	Date of mailing of the international search report 27 January, 2004 (27.01.04)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer
Faxsimile No.	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/12523

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2002-119 A (Kyowa Engineering Kabushiki Kaisha), 08 January, 2002 (08.01.02), Column 5, lines 31 to 33; column 6, lines 25 to 29 (Family: none)	4,10,13,14, 27-32
Y	Microfilm of the specification and drawings annexed to the request of Japanese Utility Model Application No. 78890/1979 (Laid-open No. 180425/1980) (Kabushiki Kaisha Nikki), 25 December, 1980 (25.12.80), Page 1, lines 11 to 15 (Family: none)	15-20

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/12523

Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

The inventions of claims 1-12, 27-30, 33 are characterized by cleaning an object with water containing nanobubbles.

The inventions of claims 13, 14, 31, 32 are characterized by purifying water with nanobubbles (however, what is cleaned and sterilized is unclear in the invention of claim 32).

The inventions of claims 15-20 are characterized by recovering an organism from fatigue with water containing nanobubbles.

The invention of claims 21-26 are characterized by applying liquid containing nanobubbles to a chemical reaction.

1. As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.

2. As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.

3. As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.

No protest accompanied the payment of additional search fees.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. C17 B08B3/10 A61H33/00 A23N12/02

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. C17 B08B3/10 A61H33/00 A23N12/02

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1940年-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971年-1996年
 日本国登録実用新案公報 1994年-2003年
 日本国実用新案登録公報 1996年-2003年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	US 6209855 B1 (Canzone Limited, Tortola) 2000 1. 03. 03, 第7欄, 第16-35行, 第8欄第51行-第9 欄第5行 & JP 14-543960 A, 第2頁, 第2-15行, 第1 8頁, 第1-13行 & WO 00/67886 A & AU 4388700 A & EP 1173271 A	21-26, 33
Y		1-20, 27-32

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す
もの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日
以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行
日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する
文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって
出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論
の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明
の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以
上の文献との、当業者にとって自明である組合せに
よって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

26. 12. 03

国際調査報告の発送日

27. 1. 2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

栗山 卓也

3K

9628

電話番号 03-3581-1101 内線 3332

C (続き) 関連すると認められる文献		関連する 請求の範囲の番号
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	
Y	日本国実用新案登録出願 2-63062号 (日本国実用新案登録出願公開 4-21381号) の願書に添付した明細書及び図面の内容を撮影したマイクロフィルム (小林明) 1992. 02. 24, 第3頁, 第11-12行, 第4頁第16行-第5頁第1行 (ファミリーなし)	1-12
Y	JP 2002-119 A (協和エンジニアリング株式会社) 2002. 01. 08, 第5欄, 第31-33行, 第6欄, 第25-29行 (ファミリーなし)	4, 10, 13, 14, 27-32
Y	日本国実用新案登録出願 54-78890号 (日本国実用新案登録出願公開 55-180425号) の願書に添付した明細書及び図面の内容を撮影したマイクロフィルム (株式会社日器) 1980. 1. 25, 第1頁, 第11-15行 (ファミリーなし)	15-20

第I欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（PCT第17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第II欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

請求項1～12, 27～30, 33に係る発明は、ナノバブルを含む水により物体の洗浄を行うことを特徴とするものである。
 請求項13, 14, 31, 32に係る発明は、ナノバブル等により水を浄化等することを特徴とするものである（ただし、請求項32は洗浄殺菌対象が不明。）、
 請求項15～20に係る発明は、ナノバブルを含む水により生体の疲労回復を行うことを特徴とするものである。
 請求項21～26に係る発明は、ナノバブルを含む液体を化学反応に利用することを特徴とするものである。

1. 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
- 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。